

## 明 細 書

強誘電体磁器組成物およびそれを用いた強誘電体応用素子

技術分野

- [0001] 本発明は、強誘電体磁器組成物およびそれを用いた強誘電体応用素子に関し、特にたとえば、セラミックフィルタ、セラミック発振子およびアクチュエータに代表される圧電歪セラミック素子の材料、または電気光学効果素子（ポッケルスセル）、光高調波発生素子および四光波混合素子（フォトリフラクティブ素子）に代表される非線形光学素子の材料として有用な強誘電体磁器組成物およびそれを用いた強誘電体応用素子に関する。

背景技術

- [0002] 従来より、圧電素子には、チタン酸ジルコン酸鉛（ $\text{Pb}(\text{Ti}_x\text{Zr}_{1-x})\text{O}_3$ ）、または、チタン酸鉛（ $\text{PbTiO}_3$ ）を主成分とする強誘電体磁器組成物が広く用いられている。また、非特許文献1などには、 $(\text{Ba}, \text{Sr})_2\text{NaNb}_5\text{O}_{15}$ が、あるいは非特許文献2には $\text{Ba}_2\text{AgNb}_5\text{O}_{15}$ が報告されている。

非特許文献1: J. Am. Ceram. Soc., 52(1976)276

非特許文献2: J. J. Appl. Phys., 13(1974)1291

発明の開示

発明が解決しようとする課題

- [0003] しかしながら、チタン酸ジルコン酸鉛、または、チタン酸鉛を主成分とする圧電磁器組成物は、有害なPbが含まれているため、製造時あるいは廃棄時にその対策のためのコストがかかる。
- [0004] また、 $(\text{Ba}, \text{Sr})_2\text{NaNb}_5\text{O}_{15}$ は、原料のNa化合物が水溶性であるため水中で原料を混合し、その後混合されたスラリーを乾燥するという簡便な工程を採用することができないという問題点がある。さらに長期間の使用のうちに結晶中のNaイオンが拡散・マイグレーションによって粒界や電極との界面に偏析し、磁器が吸湿崩壊することが懸念される。
- [0005] また、 $\text{Ba}_2\text{AgNb}_5\text{O}_{15}$ は、焼結が困難なため広く実用に供されるに至っていない。

[0006] 本発明はこのような事情に鑑みなされたものであって、有害物であるPbを含まず、水溶性のアルカリイオンを含まず、焼結性の良好な強誘電体磁器組成物およびそれを用いた圧電セラミック素子、電歪セラミック素子、さらには、電気光学効果素子、光高調波発生素子等の非線形光学素子を提供することを目的とする。

#### 課題を解決するための手段

[0007] この発明に係わる強誘電体磁器組成物は、上述した技術的課題を解決するため、一般式  $(\text{Ba}_{1-x-y}\text{Sr}_x\text{Ca}_y)_2\text{Ag}_{1-d}\text{Nb}_5\text{O}_{15-d/2}$  で表され、タングステンブロンズ構造を有する主成分を含有し、前記x、yおよびdが各々  $0.1 \leq x+y \leq 0.8$ 、 $0 \leq d \leq 0.6$ であることを特徴とする。また、この発明に係わる強誘電体磁器組成物は、前記主成分に加えて一般式  $a\text{MnO}_2 + b\text{SiO}_2$  (ただしa、bは前記主成分100重量部に対する各重量部を示す。) で表される副成分を含有し、前記aおよびbが  $a+b \leq 5$ であることを特徴とする。さらに、この発明に係わる強誘電体磁器組成物は、圧電セラミック素子あるいは電歪セラミック素子、さらには、電気光学効果素子、光高調波発生素子等の非線形光学素子への適用が可能である。

#### 発明の効果

[0008] 本発明の強誘電体磁器組成物およびセラミック電子部品によれば、前記構成を備えているため、有害物であるPbを含まず、水溶性のアルカリイオンを含まず、焼結性が良好であるというという効果が得られる。

#### 図面の簡単な説明

[0009] [図1]強誘電体応用素子の一形態である。  
 [図2]試料1表面の電子顕微鏡写真である。  
 [図3]試料13表面の電子顕微鏡写真である。  
 [図4]試料10、25、31のX線回折図である。

#### 符号の説明

[0010] 11 強誘電体  
 12a、12b 電極

発明を実施するための最良の形態

- [0011] この発明に係わる強誘電体磁器組成物の一般式において、 $x+y < 0.1$ では、焼結体の結晶粒径が異常に成長し、結晶粒界あるいは結晶粒内に発生する応力が異常に大きくなることから、焼結体としての形状を保持できなくなるので好ましくない。 $x+y > 0.8$ では、強誘電性にかかわる転移温度が $60^{\circ}\text{C}$ 以下と低くなるので好ましくない。さらに $x+y > 0.8$ では、Agイオンが所定のサイトに入りにくく、Agが揮発しやすくなり、結果として $d > 0.6$ となる。
- [0012] そこで、この発明では、 $x$ および $y$ の範囲を $0.1 \leq x+y \leq 0.8$ とし、 $d$ の範囲を $0 \leq d \leq 0.6$ とした。
- [0013] また、この発明においては、Mn酸化物やSi酸化物を主成分に対して添加することにより焼成温度を低下させることができる。なお、Mn酸化物およびSi酸化物は前記主成分100重量部に対し、それぞれ $\text{MnO}_2$ 換算、 $\text{SiO}_2$ 換算して合計5重量部以下の範囲で含有することが添加しない時の特性を劣化させない点で好ましい。また、この発明に係わる強誘電体磁器組成物は、前記要件を満たす限り均一な固溶体であってもよいし、固溶体の混合物であってもよい。さらに、この発明に係わる強誘電体組成物は、多結晶体であってもよいし、単結晶体であってもよい。
- [0014] 以下にこの発明に係わる強誘電体磁器組成物の特性を評価するために実施した実験例について説明する。
- [0015] この発明における強誘電体磁器組成物は、通常の強誘電体や、誘電体材料と同様に作製できる。たとえば、まず、 $\text{BaCO}_3$ 、 $\text{SrCO}_3$ 、 $\text{CaCO}_3$ 、 $\text{Ag}_2\text{O}$ 、 $\text{Nb}_2\text{O}_5$ を所定量調合し、純水中で、ジルコニアボールなどのメディアとともに4〜24h混合する。その際、より均一混合とするためにソルビタンエステルなどの分散剤を添加してもよい。その後、混合されたスラリーを乾燥させ、通常の電気炉により、酸化性雰囲気中、 $800^{\circ}\text{C}$ 〜 $1150^{\circ}\text{C}$ 、1〜24h仮焼成する。この仮焼物を純水中にポリビニルアルコールなどのバインダーとともにメディアにより粉砕、混合し、これを乾燥させる。この乾燥粉末を一軸プレスにより円板試料を作製する。さらに試料を酸化性雰囲気中、 $950^{\circ}\text{C}$ 〜 $1350^{\circ}\text{C}$ 、3〜10h焼成する。これらの作業によりこの発明の強誘電体磁器組成物からなる磁器を得ることができる。さらに、同様にして作製された磁器を原料として帯溶融法により、単結晶を得ることもできる。

[0016] 本発明にかかる強誘電体磁器組成物は圧電電歪セラミック素子または非線形光学素子に用いることができる。これら素子には公知の様々な形状のものがあるが、最も単純な構造のひとつとして図1に示すように平板状の強誘電体11の両面に電極12a、12bを備えたものがある。

[0017] 以下に、この発明を実施例に基づいて説明する。

### 実施例 1

[0018] まず、出発原料として $\text{BaCO}_3$ 、 $\text{SrCO}_3$ 、 $\text{CaCO}_3$ 、 $\text{Ag}_2\text{O}$ 、 $\text{Nb}_2\text{O}_5$ 、 $\text{MnO}_2$ 、 $\text{SiO}_2$ を準備した。次に、これらの原料粉末を、一般式 $(\text{Ba}_{1-x-y}\text{Sr}_x\text{Ca}_y)\text{Ag}_{1-d}\text{Nb}_5\text{O}_{15-d/2}$ で表される主成分と、一般式 $a\text{MnO}_2 + b\text{SiO}_2$  (ただしa、bは前記主成分100重量部に対する各重量部を示す。)で表される副成分とを含有し、前記x、y、aおよびbが各々以下の表1～表2に示す組成になるように配合した。ただし $\text{Ag}_2\text{O}$ の配合量のみ前記一般式で $d=0$ となるようにした。

[0019] 得られた配合物を純水中で混合した後、乾燥した。それから電気炉により、酸化性雰囲気中、 $1100^\circ\text{C}$ ～ $1150^\circ\text{C}$ 、10h仮焼成した。仮焼物を粉砕し、粉末100重量部に対しポリビニルアルコールが5重量部となるように混合し、これを乾燥して得た粉末を一軸プレス(圧力1GPa)で直径12mm、厚み1mmに成形し、円盤状試料を得た。これらの試料を表1および表2に示す温度で、酸化性雰囲気中焼成した。この焼成工程において配合されたAgの一部が揮発し、一般式中のdが0より大きくなることもある。さらに、試料5の仮焼粉から作製した棒状焼成体を原料とし帯熔融法により単結晶を作製し、厚み1mmに切断した。その後、Agペーストを試料上下面に塗付し、 $800^\circ\text{C}$ にて焼き付けた。このようにして得た試料について比誘電率、転移温度および室温で $2\text{V}/\mu\text{m}$ 印加後の残留分極を測定した。また組成を分析し、分析値から一般式中のdの値を求めた。それらの結果もそれぞれ表1、表2および表3に示す。

なお、表1に示した各試料は、上記一般式 $a\text{MnO}_2 + b\text{SiO}_2$ におけるaおよびbの値が0の試料(すなわち、Mn酸化物およびSi酸化物を副成分として含有させていない試料)である。

表1において、試料番号に「\*」を付していないものは本発明の範囲内にある実施例の試料であり、試料番号に「\*」を付したものは本発明の範囲外の比較例の試料

である。

また、表2において、試料番号に「\*」を付していないものは請求項1の要件に加え、請求項2の要件をも満たす試料であり、試料番号に「\*」を付したものは本発明の請求項1の要件は備えているが、請求項2の要件を備えていない試料である。

また、表3には上述の単結晶の例を示している。

[0020] [表1]

試料 番号	x	y	仮焼温度 / °C	焼成温度 / °C	比誘電率	転移温度 / °C	残留分極 / $\mu\text{C}\cdot\text{cm}^{-2}$	d
*1	0.0	0.0	1150	1350	430	420	0.97	0.19
2	0.1	0.0	1150	1300	642	360	1.05	0.09
3	0.0	0.1	1150	1250	387	350	1.01	0.15
4	0.2	0.0	1150	1300	531	320	1.10	0.00
5	0.1	0.1	1150	1250	544	312	0.94	0.00
6	0.0	0.2	1150	1250	521	322	1.07	0.01
7	0.3	0.0	1150	1300	639	237	1.16	0.04
8	0.2	0.1	1150	1200	652	242	0.98	0.03
9	0.1	0.2	1150	1150	494	266	0.88	0.14
10	0.0	0.3	1150	1200	457	281	1.14	0.15
11	0.4	0.0	1150	1300	629	187	1.22	0.00
12	0.3	0.1	1150	1250	653	193	1.15	0.02
13	0.1	0.3	1150	1200	652	225	0.93	0.06
14	0.0	0.4	1150	1200	647	237	1.18	0.28
15	0.5	0.0	1150	1300	802	155	1.29	0.07
16	0.4	0.1	1150	1250	626	157	1.18	0.10
17	0.3	0.2	1150	1200	625	171	0.95	0.03
18	0.1	0.4	1150	1150	671	203	1.08	0.12
19	0.0	0.5	1150	1150	659	196	1.24	0.22
20	0.6	0.0	1150	1250	933	125	1.28	0.14
21	0.5	0.1	1150	1200	875	131	1.08	0.10
22	0.3	0.3	1150	1200	765	142	0.96	0.43
23	0.1	0.5	1150	1150	632	146	1.16	0.42
24	0.0	0.6	1150	1200	565	146	1.29	0.48
25	0.7	0.0	1150	1250	1284	90	1.16	0.06
26	0.6	0.1	1150	1200	1221	91	0.94	0.24
27	0.4	0.3	1150	1200	1018	92	0.86	0.30
28	0.3	0.4	1150	1200	892	93	0.98	0.33
29	0.1	0.6	1150	1150	422	98	1.22	0.43
30	0.0	0.7	1150	1200	343	105	1.30	0.53
31	0.8	0.0	1150	1300	1195	65	1.07	0.14
32	0.7	0.1	1150	1300	1190	63	0.73	0.18
33	0.5	0.3	1150	1300	1182	62	0.72	0.28
34	0.3	0.5	1150	1150	372	67	0.94	0.44
35	0.1	0.7	1150	1150	183	74	1.09	0.57
36	0.0	0.8	1150	1150	190	95	1.10	0.59
*37	0.9	0.0	1150	1250	867	48	1.02	0.71
*38	0.7	0.2	1150	1300	245	23	0.37	0.80
*39	0.5	0.4	1150	1100	47	2	0.47	0.80
*40	0.3	0.6	1150	1100	63	22	0.71	0.92
*41	0.1	0.8	1150	1100	92	55	0.78	0.88
*42	0.0	0.9	1150	1100	115	55	0.80	0.77

[0021] [表2]

試料 番号	x	y	a	b	仮焼温度 / °C	焼成温度 / °C	比誘電率	転移温度 / °C	残留分極 / $\mu\text{C}\cdot\text{cm}^{-2}$	d
43	0.1	0.0	5.0	0.0	1100	1200	640	361	0.98	0.04
44	0.0	0.1	0.0	5.0	1100	1150	380	353	0.92	0.04
45	0.2	0.0	0.5	0.0	1100	1200	582	326	1.01	0.04
46	0.1	0.1	0.5	1.0	1100	1150	566	314	0.92	0.03
47	0.1	0.1	2.5	2.5	1100	1150	552	308	0.90	0.02
*48	0.1	0.0	6.0	0.0	1100	1200	582	321	0.56	0.09
*49	0.0	0.1	0.0	6.0	1100	1150	277	345	0.64	0.14
*50	0.2	0.0	6.0	0.0	1100	1200	422	318	0.57	0.00
*51	0.1	0.1	3.0	3.0	1100	1150	285	304	0.45	0.02
*52	0.0	0.2	2.5	3.0	1100	1200	396	313	0.49	0.02

[0022] [表3]

試料 番号	x	y	比誘電率		残留分極 / $\mu\text{C}\cdot\text{cm}^{-2}$		転移温度 / °C	d
			(001)方向	(100)方向	(001)方向	(100)方向		
53	0.1	0.1	673.0	328.0	2.2	0.3	303	0.21

[0023] 表1からわかるように、 $x+y$ が0.8より大きく $d$ が0.6より大きい試料番号37から42では、転移温度が室温近くまで低下している。 $x+y$ が0.1より小さい試料番号1については、辛うじて測定は可能であったが、試料は脆く、実際の使用には耐えられない。図2および図3に本発明の実験例における試料1、13の表面の電子顕微鏡写真をそれぞれ示す。試料13は緻密な焼結体の様相を示しているのに対して、試料1は結晶が大きく成長し、クラックの生成がみられる。

[0024] また、表2より、Mn酸化物およびSi酸化物の含有量の和(一般式中の $a$ と $b$ の和)が5より大きい試料番号48から52の試料(すなわち、本発明の請求項1の要件は備えているが、請求項2の要件を備えていない試料)の場合、比誘電率が277〜582、転移温度が304〜345°Cと、試料番号43〜47と同じ程度の値は確保されているものの、室温で2V/ $\mu\text{m}$ 印加後の残留分極が0.45〜0.64  $\mu\text{C}\cdot\text{cm}^{-2}$ と低くなっていることがわかる。これに対し、Mn酸化物および／またはSi酸化物を、それぞれ $\text{MnO}_2$ 換算、 $\text{SiO}_2$ 換算して、主成分100重量部に対し、合計5重量部以下の範囲で含有させた試料番号43〜47の試料(本発明の請求項1及び2の要件を備えた試料)の場合、Mn酸化物および／またはSi酸化物を添加しない場合(例えば、表1の試料番号2〜5)に比べて、転移温度を大きく変えることなしに焼成温度を低下させることが可

能になること、および焼結性の向上に伴い比誘電率が安定し、かつ、いくらか上昇していることがわかる。また、試料番号43〜47の試料の場合、室温で2V/ $\mu$ m印加後の残留分極が0.90〜1.01と高く、強誘電体としての特性が十分に確保されていることがわかる。

なお、表2の試料番号43〜47のdの値が、表1の試料番号2〜5のdの値と異なっているが、これは副成分であるMn酸化物、Si酸化物の添加の影響によるものであり、表2の試料番号43〜47と、表1の試料番号2〜5におけるdの値の差程度であれば、特性に与える影響はほとんどないものと考えられる。

[0025] なお、上述した例では、Ba、Sr、Ca、Ag、Nb、MnおよびSiの各々について、BaCO<sub>3</sub>、SrCO<sub>3</sub>、CaCO<sub>3</sub>、Ag<sub>2</sub>O、Nb<sub>2</sub>O<sub>5</sub>、MnO<sub>2</sub>およびSiO<sub>2</sub>を原料として用いたが、それぞれ別の、たとえば、酸化物、水酸化物、炭酸塩あるいは有機塩のような他の化合物の状態で用意されたものを原料に用いてもよい。また、それらの混合などは純水中で行っているが、エチルアルコールなど一般の溶剤を用いて行うことを妨げるものではない。さらに、単結晶の作製方法として帯熔融法を用いたが、通常のチョクラルスキー法やLPE法などを用いることも可能である。

[0026] 図4に本発明の実験例における試料10、25、31のX線回折図を示す。いずれもタングステンブロンズ構造を示す。

#### 産業上の利用可能性

[0027] 本発明によれば、有害物であるPbを含まず、かつ、水溶性のアルカリイオンを含まない、焼結性に優れた強誘電体磁器組成物を得ることが可能になり、該強誘電体磁器組成物を用いることにより、所望の特性を備えた信頼性の高い圧電セラミック素子、電歪セラミック素子、電気光学効果素子、光高調波発生素子等の非線形光学素子を得ることが可能になる。

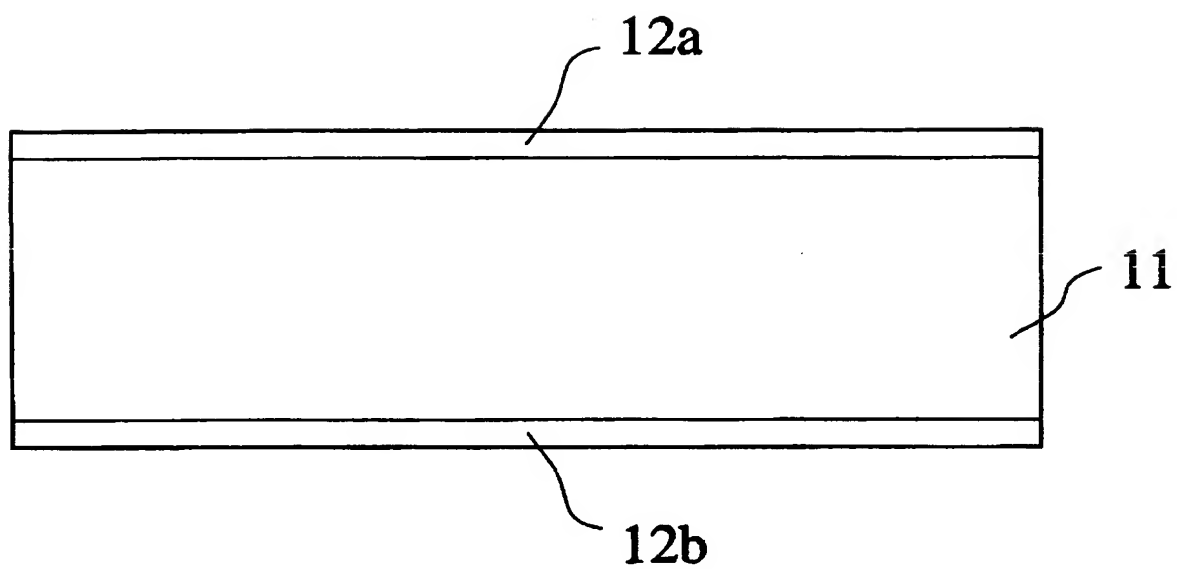
したがって、本発明は、圧電セラミック素子、電歪セラミック素子、電気光学効果素子、光高調波発生素子等の非線形光学素子などの分野に広く利用することが可能である。

## 請求の範囲

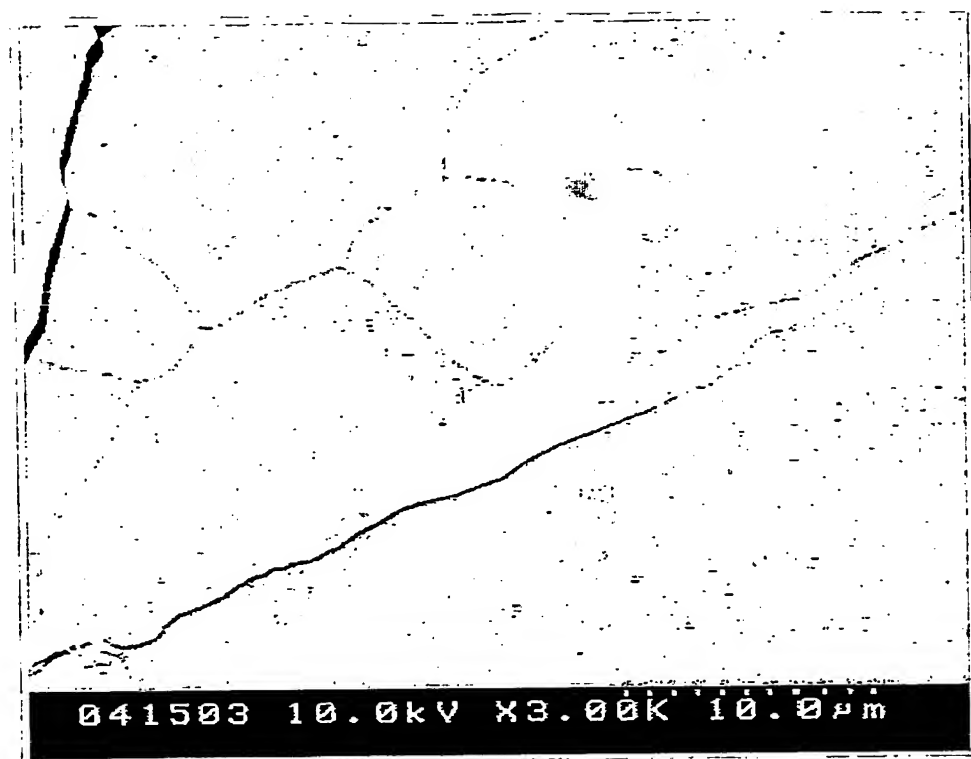
- [1] 一般式  $(\text{Ba}_{1-x-y}\text{Sr}_x\text{Ca}_y)_2\text{Ag}_{1-d}\text{Nb}_5\text{O}_{15-d/2}$  で表され、タングステンブロンズ構造を有する主成分を含有し、  
 前記x、yおよびdが各々  
 $0.1 \leq x+y \leq 0.8$ 、  
 $0 \leq d \leq 0.6$   
 であることを特徴とする強誘電体磁器組成物。
- [2] Mn酸化物およびSi酸化物を副成分として含有し、  
 前記酸化物を一般式  $a\text{MnO}_2 + b\text{SiO}_2$  (ただしa、bは前記主成分100重量部に対する各重量部を示す。) で表したとき、  
 前記aおよびbが  
 $a+b \leq 5$ 、  
 であることを特徴とする、請求項1に記載の強誘電体磁器組成物。
- [3] 請求項1または2のいずれかの強誘電体磁器組成物を用いた圧電電歪セラミック素子または非線形光学素子。



[図1]

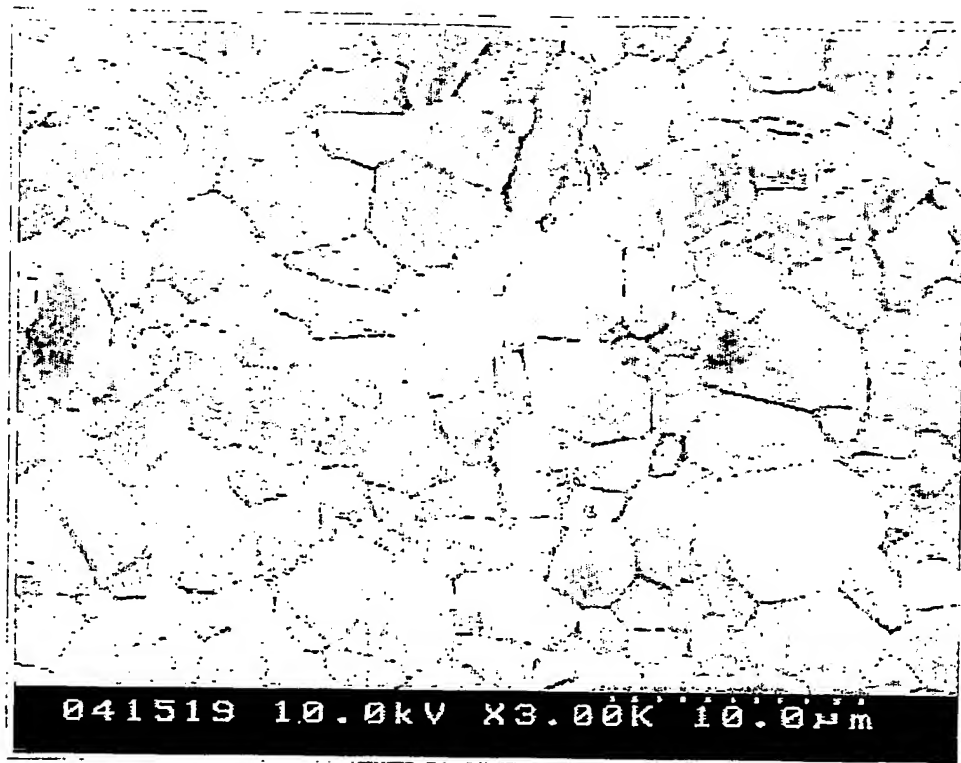


[図2]



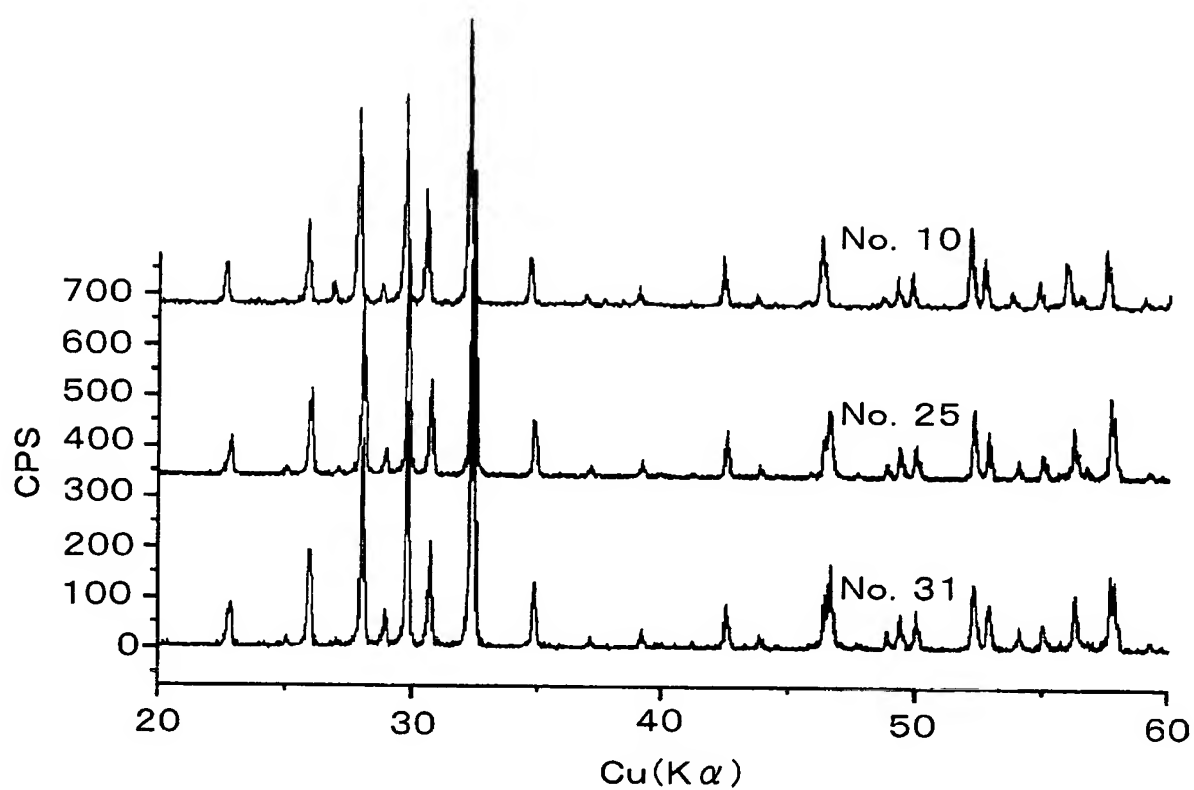
試料1

[図3]



試料13

[図4]



## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2004/017097

## A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

Int.Cl<sup>7</sup> C04B35/495, G02F1/055, G02F1/355, H01G4/12, H01L41/187

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

## B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

Int.Cl<sup>7</sup> C04B35/42-35/50, G02F1/055, G02F1/355, H01L41/187

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Jitsuyo Shinan Koho 1926-1996 Toroku Jitsuyo Shinan Koho 1994-2004

Kokai Jitsuyo Shinan Koho 1971-2004 Jitsuyo Shinan Toroku Koho 1996-2004

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)

## C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	JEAN RAVEZ et al., CATIONIC ORDERING IN SOME FERROELECTRIC "TKWB" PHASES, FERROELECTRICS, 1988, Vol.81, pages 301 to 304	1, 3
A	JP 2001-196184 A (TDK Corp.), 19 July, 2001 (19.07.01), Par No. [0038] (Family: none)	1-3
A	JP 2003-261379 A (National Institute of Advanced Industrial Science and Technology), 16 September, 2003 (16.09.03), Par No. [0004] (Family: none)	1-3

☒ Further documents are listed in the continuation of Box C.☐ See patent family annex.

## \* Special categories of cited documents:

"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance

"E" earlier application or patent but published on or after the international filing date

"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)

"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means

"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention

"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone

"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art

"&amp;" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search  
28 December, 2004 (28.12.04)Date of mailing of the international search report  
18 January, 2005 (18.01.05)Name and mailing address of the ISA/  
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2004/017097

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	JP 2001-48646 A (Kyocera Corp.), 20 February, 2001 (20.02.01), Par Nos. [0020], [0028] (Family: none)	2

## A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl. <sup>7</sup> C04B35/495, G02F1/055, G02F1/355, H01G4/12, H01L41/187

## B. 調査を行った分野

## 調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl. <sup>7</sup> C04B35/42-35/50, G02F1/055, G02F1/355, H01L41/187

## 最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

日本国実用新案公報 1926-1996年  
 日本国公開実用新案公報 1971-2004年  
 日本国登録実用新案公報 1994-2004年  
 日本国実用新案登録公報 1996-2004年

## 国際調査で使用した電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語)

## C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
X	JEAN RAVEZ, et al., CATIONIC ORDERING IN SOME FERROELECTRIC "TKWB" PHASES, FERROELECTRICS, 1988, 第81巻, 第301-304頁	1, 3
A	JP 2001-196184 A (ティーディーケー株式会社) 2001. 07. 19, 【0038】 (ファミリーなし)	1-3
A	JP 2003-261379 A (独立行政法人産業技術総合研究所) 2003. 09. 16, 【0004】 (ファミリーなし)	1-3
A	JP 2001-48646 A (京セラ株式会社) 2001. 02. 20, 【0020】, 【0028】, (ファミリーなし)	2

☐ C欄の続きにも文献が列挙されている。☐ パテントファミリーに関する別紙を参照。

## \* 引用文献のカテゴリー

「A」 特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの  
 「E」 国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの  
 「L」 優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献 (理由を付す)  
 「O」 口頭による開示、使用、展示等に言及する文献  
 「P」 国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

の日の後に公表された文献

「T」 国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの

「X」 特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの

「Y」 特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの

「&amp;」 同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日

28. 12. 2004

国際調査報告の発送日

18. 1. 2005

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁 (ISA/JP)

郵便番号100-8915

東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

特許庁審査官 (権限のある職員)

武重 竜男

4T

9728

電話番号 03-3581-1101 内線 3463

**This Page is Inserted by IFW Indexing and Scanning  
Operations and is not part of the Official Record.**

## **BEST AVAILABLE IMAGES**

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images include but are not limited to the items checked:

☐ **BLACK BORDERS**

☐ **IMAGE CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES**

☐ **FADED TEXT OR DRAWING**

☐ **BLURRED OR ILLEGIBLE TEXT OR DRAWING**

☐ **SKEWED/SLANTED IMAGES**

☐ **COLOR OR BLACK AND WHITE PHOTOGRAPHS**

☐ **GRAY SCALE DOCUMENTS**

☒ **LINES OR MARKS ON ORIGINAL DOCUMENT**

☐ **REFERENCE(S) OR EXHIBIT(S) SUBMITTED ARE POOR QUALITY**

☐ **OTHER:** \_\_\_\_\_

**IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.**

**As rescanning these documents will not correct the image problems checked, please do not report these problems to the IFW Image Problem Mailbox.**